日本中性子科学会ポスター賞を受賞して

中性子科学研究施設　中島研究室　修士課程 1 年　大澤 優太

この度、2025 年 11 月に理研和光キャンパスで開催された日本中性子科学会第 25 回年会にて「マルチフェロイック物質 Mn_3WO_6 の非偏極・偏極中性子回折」という題名でポスター発表を行い、優秀ポスター賞を受賞する栄誉に恵まれました。以下、この内容を簡単にご紹介させていただきます。

磁気電気マルチフェロイクスは、強誘電分極と磁気秩序を同時に示す物質であり、近年の凝縮系物理学において精力的に研究されています。その強誘電特性は磁気反転対称性の破れに起因するため、マルチフェロイクスは磁場による電気分極制御といった新規な交差相関現象を示し、将来の電子デバイスへの応用が期待されています[1]。また、このような新規な交差相関現象の理解を深めるために、種々のマルチフェロイック物質の結晶構造と磁気構造を実験的に決定することが必要不可欠になっています。

そこで本研究では新規マルチフェロイック化合物 Mn_3WO_6に着目しました。本系は室温で R-3 空間群に属する中心対称な菱面体結晶構造を有し、低温で逐次的に二つの磁気相転移を示します。そのうち低温側の磁気転移温度以下では自発的電気分極を示すことから[2]、この低温相のスピン配列が反転対称性を破ることで強誘電性が発現していることが示唆されます。本研究では未だ解明されていない、本化合物のマルチフェロイック特性の起源を解明するため、JRR-3 の 5G PONTA 分光器を用いた非偏極・偏極中性子散乱実験により結晶構造と磁気構造を調査しました。

結晶構造については、多数の核反射の積分強度を点検出器で測定し、計算値と比較することで、先行研究の結晶構造[3]を再現していることが確認できました。磁気構造については、まず 2 次元検出器を用いた非偏極中性子回折によって逆空間を網羅的に探査し、複数の非整合磁気反射を観測して指数づけすることにより磁気伝搬ベクトルを決定しました。その結果、高温側の磁気秩序はab面内に非整合な変調を持ち、c軸方向に結晶の 2 倍の周期構造を持つことを明らかにしました。さらに強誘電転移温度以下では、非整合磁気反射が分裂し、さらに格子整合な磁気反射も新たに現れることがわかりました。また、ここでは詳細は割愛しますが、スピン偏極した入射中性子と、散乱中性子のスピン状態を解析する ^{3}He スピンフィルターを組み合わせた偏極中性子散乱実験により、各磁気相における磁気構造の対称性に関する情報も得ることができました。

最後に、以上の実験結果と計算値を比較することで本化合物の磁気構造モデルを考案しました。その結果、高温相では、磁性イオンである Mn^{2+}の磁気モーメントの熱平均値が正弦波で変調する磁気構造をとっていることが明らかになりました。この状態では系全体の反転対称性は破れません。他方、強誘電転移温度以下については未だ解析途中ですが、現状のデータからはらせん面を有する non-collinear 構造に変化した可能性が示されており、これにより反転対称性が破れて強誘電性が生じたのではないかと考えています。

以上のように、非偏極・偏極中性子回折実験により本化合物の磁気構造を決定することができました。2 次元検出器と ^{3}He スピンフィルターを組み合わせた偏極中性子散乱測定は、逆格子空間を 3 次元的にスキャンしながら磁気モーメントの XYZ 成分を分離して測定できる手法であり、他のマルチフェロイック物質など複雑な磁気構造を持つ物質系への適用を期待しています。

本研究は、中島研のメンバーをはじめ、単結晶試料を育成していただいた新領域物質系専攻の有馬研の有馬孝尚教授、虎頭大輔様、2 次元検出器や ^{3}He スピンフィルター等のセットアップでご協力いただいた JAEA や KEK の皆様との共同研究です。この場をお借りしまして、皆様に心より御礼申し上げます。

参考文献

[1] Y. Tokura *et al.*, Rep. Prog. Phys. **77**, 076501 (2014).
[2] A. Maignan, *et al.*, Chem. Mater. **32**, 13 (2020).
[3] E. Klüver and H. Müller-Buschbaum, Z. Anorg. Allg. Chem., **620**, 733–736 (1994).